

AROMATIC POLYESTER-AMIDE AND ITS PRODUCTION

Patent number: JP60206828
Publication date: 1985-10-18
Inventor: OBARA TEIJI; Ooba MASAYUKI; SANADA SHINICHI
Applicant: TOKYO SHIBAURA ELECTRIC CO
Classification:
- **International:** C08G69/44
- **European:**
Application number: JP19840061207 19840330
Priority number(s): JP19840061207 19840330

Report a data error here

Abstract of JP60206828

PURPOSE: To obtain the titled amide excellent in heat resistance, mechanical strength, electrical insulation, moldability and compatibility with other resins, by polycondensing monomers in the presence of a specified MW modifier. **CONSTITUTION:** Terephthaloyl dichloride and/of isophthaloyl dichloride (A) are reacted with (B) 2,2-bis(4'-hydroxyphenyl)propane and 2,2-(4'-hydroxy-4"-aminodiphenyl)propane and (C) 0.2-3 equivalent %, based on component A, aromatic monohydroxy compound (e.g., p-hydroxydiphenyl) as a MW modifier at 0-30 deg.C in the presence of an acid acceptor (e.g., triethylamine) in an inert organic solvent (e.g., tetrahydrofuran) to obtain the titled amide containing structural units of formulae I-IV (wherein the structural units are bonded to each other through an ester and/or amide bond), terminated with an aryloxy group (e.g., monovalent group derived by removing the hydroxylic H atom from a phenol derivative) and having a logarithmic viscosity of 0.4-1.0dl/g.

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

⑫ 公開特許公報(A) 昭60-206828

⑤ Int. Cl.⁴

C 08 G 69/44

識別記号

庁内整理番号

7142-4J

④ 公開 昭和60年(1985)10月18日

審査請求 未請求 発明の数 2 (全9頁)

④ 発明の名称 芳香族ポリエステルアミド及びその製造方法

② 特 願 昭59-61207

② 出 願 昭59(1984)3月30日

⑦ 発 明 者 小 原 禎 二 川崎市幸区小向東芝町1番地 東京芝浦電気株式会社総合研究所内

⑦ 発 明 者 大 場 正 幸 川崎市幸区小向東芝町1番地 東京芝浦電気株式会社総合研究所内

⑦ 発 明 者 真 田 信 一 川崎市幸区小向東芝町1番地 東京芝浦電気株式会社総合研究所内

⑦ 出 願 人 株 式 会 社 東 芝 川崎市幸区堀川町72番地

⑦ 代 理 人 弁 理 士 津 国 肇

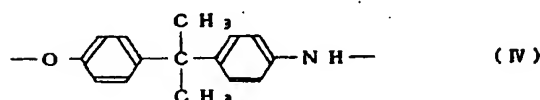
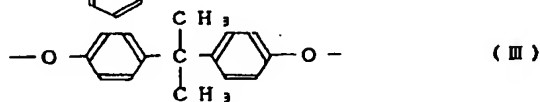
明 細 書

1. 発明の名称

芳香族ポリエステルアミド及びその製造方法

2. 特許請求の範囲

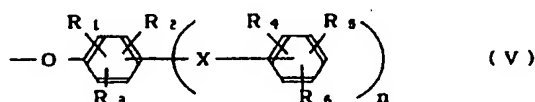
1. 式(I), (II), (III), (IV):



で示される構造単位を含み、各構造単位がエステル結合及び／又はアミド結合により連結され、か

つ末端がアリールオキシ基を有し、0.4～1.0 dl/g (シクロヘキサノン中、30℃で測定)の対数粘度を有する芳香族ポリエステルアミド。

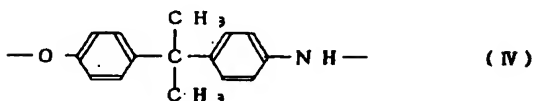
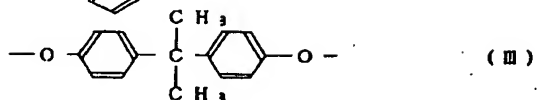
2. アリールオキシ基が、式(V):



(式中、R₁～R₆は、それぞれ、同一であっても異なってもよく、水素原子、フェニル基、炭素原子数1～4のアルキル基又は炭素原子数1～4のアルコキシ基を要し、Xは直接結合、メチレン基又は2,2-プロピレン基を要し、nは0又は1である)

で示される基である特許請求の範囲第1項に記載の芳香族ポリエステルアミド。

3. 式(I), (II), (III)及び(IV):

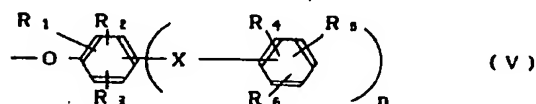


で示される構造単位を含み、各構造単位がエステル結合及び／又はアミド結合により連結され、かつ末端がアリアルオキシ基を有し、0.4～1.0 dl/g (シクロヘキサノン中、30℃で測定)の対数粘度を有する芳香族ポリエステルアミドの製造方法であって、

テレフタル酸ジクロリド及び／又はイソフタル酸ジクロリドと、2,2-ビス(4'-ヒドロキシ

フェニル)プロパン及び2,2-(4'-ヒドロキシ-4''-アミノジフェニル)プロパンとを分子量調節剤である芳香族モノヒドロキシ化合物と共に重合させることを特徴とする芳香族ポリエステルアミドの製造方法。

4. アリアルオキシ基が、式(V)：



(式中、 $R_1 \sim R_6$ は、それぞれ、同一であっても異なってもよく、水素原子、フェニル基、炭素原子数1～4のアルキル基又は炭素原子数1～4のアルコキシ基を表わし、Xは直接結合、メチレン基又は2,2-プロピレン基を表わし、nは0又は1である)

で示される基である特許請求の範囲第3項記載の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

(発明の技術分野)

本発明は芳香族ポリエステルアミド及びその製造方法に関し、更に詳しくは、高い耐熱性、高い機械的強度及び良好な電気絶縁性等を保持し、しかも、成形性が優れた芳香族ポリエステルアミド及びその製造方法に関する。

(発明の技術的背景とその問題点)

近年、高分子化学工業の進展に伴い、耐熱性、機械的強度及び電気絶縁性等が優れた芳香族ポリエステルアミドが開発されて来ているが、電気・電子分野において要求される高性能樹脂として、十分満足できるものは得られていないのが現状である。

目的とする高性能樹脂を得るために、研究・開発が進められた結果、特開昭57-108129号公報、特開昭57-108130号公報、特開昭57-108131号公報、特開昭56-157423号公報、特公昭46-37739号公報、ジャーナル・オブ・ポリマー・サイエンス：ポリマー・ケミストリー・エディション、第20巻、

683頁、1982年(Journal of Polymer Science: Polymer Chemistry Edition, 20, 683(1982))等において種々の方法が提案されている。

これらの先行技術文献には、溶液重合法又は界面重合法を適用して、テレフタル酸もしくはイソフタル酸又はこれらの誘導体(A)と、2,2-(4'-ヒドロキシ-4''-アミノジフェニル)プロパン又はその誘導体(B)より芳香族ポリエステルアミドを製造する方法が開示されている。

溶液重合法は前記した(A)及び(B)の原料を非反応性有機溶剤中、第3級アミン等の酸受容剤の存在下に反応せしめる方法である。また、界面重合法は前記した(A)の原料を含む非反応性有機溶剤溶液と前記した(B)の原料を含むアルカリ水溶液を混合して反応せしめる方法である。

これらの方法により得られる芳香族ポリエステルアミドは、例えば耐熱性が良好である(例えば、ガラス転位温度：220℃以上)反面、成形温度が高いため成形性が低下するという欠点があった。

したがって耐熱性、機械的強度、電気絶縁性及び成形性等の種々の特性をバランス良く具備した芳香族ポリエステルアミドの製造方法の出現が望まれていた。

なお、本件出願人は、先に、調和のとれた耐熱性、機械的強度、電気絶縁性及び成形性が優れた芳香族ポリエステルアミド及びその製造方法に関し、特許出願（特願昭58-48736号）を行った。本発明者らは、この出願において開示された芳香族ポリエステルアミドの実用化に当って、その諸特性を更に改良するために、特に、その諸特性値（特に、成形性）のバラツキを少なくするために、鋭意研究を行った結果、これら諸特性値及びそのバラツキが芳香族ポリエステルアミド自身の分子構造及びその分子量によって影響を受けることを見出し、末端が修飾され分子量が一定範囲に調整された新規な芳香族ポリエステルアミドを創製すると共に、その製造方法を確立し、本発明を完成するに至った。

（発明の目的）

で示される構造単位を含み、各構造単位がエステル結合及び／又はアミド結合により連結され、かつ末端がアリールオキシ基を有し、 $0.4 \sim 1.0$ dl/g（シクロヘキサノン中、 30°C で測定）の対数粘度を有するものである。

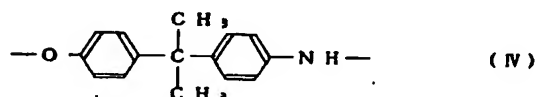
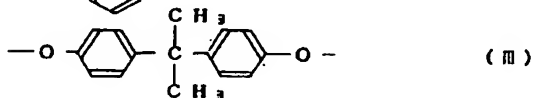
本発明の芳香族ポリエステルアミドにおけるアリールオキシ基としては、炭素原子数6～30、好ましくは炭素原子数6～20を有する芳香族モノヒドロキシ化合物のヒドロキシ基の水素原子を除いた1価の基である。この芳香族モノヒドロキシ化合物の具体例としては、フェノール誘導体、ナフトール誘導体等が挙げられる。好ましくは前記した式（V）で示される基が挙げられる。前記した式（V）中、置換基 $R_1 \sim R_6$ について、炭素原子数1～4のアルキル基とはメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*p*-ブチル基であり、炭素原子数1～4のアルコキシ基とはメトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、*i*-プロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*p*-ブトキシ基等である。

本発明の目的は上記した従来の芳香族ポリエステルアミド及びその製造方法の欠点の解消にあり、耐熱性、機械的強度及び電気絶縁性等を損なうことなく、しかも成形性に優れた芳香族ポリエステルアミド及びその製造方法を提供することにある。

（発明の概要）

本発明の芳香族ポリエステルアミドは、

式（I）、（II）、（III）及び（IV）：

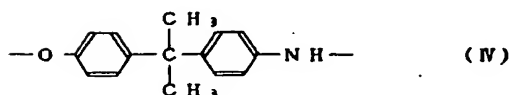
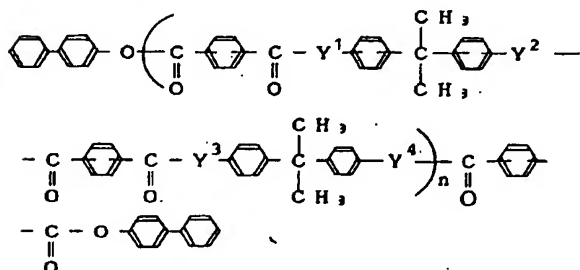


本発明の芳香族ポリエステルアミドは平均重合度が60～300の範囲であり、好ましくは90～250の範囲である。また、重畳平均分子量は $2 \times 10^4 \sim 1 \times 10^5$ の範囲であり、好ましくは $3 \times 10^4 \sim 8 \times 10^4$ の範囲である。さらにまた、対数粘度が $0.4 \sim 1.0$ dl/gの範囲であり、好ましくは $0.5 \sim 0.9$ dl/gの範囲である。対数粘度が 0.4 dl/g未満の場合には、ガラス転位温度が低下するとともに、機械的強度も低下し、 1.0 dl/gを超える場合は、熔融粘度が高すぎ成形性が不良となる傾向があるため、好ましくない。なお、本発明は使用する原料の組成及び製造方法により、又、反応原料である化合物の反応性の相違により、種々の構造を包含することが可能であり、例えば、交互共重合体、ブロック共重合体、ランダム共重合体又はこれら重合体の組合せ等が挙げられる。

本発明はその特定の構造に対応して、各種の溶剤に可溶であり、軟化温度が向上し、 400°C 以上の高い分解温度を有する。また、他の樹脂との

相溶性並びに各種充填剤との混和性が優れ、成形加工が極めて容易であるという特徴を有する。しかして、本発明はこのような性質を活用してワニス化、溶液からのキャストによるフィルム化、溶液または溶解物として押出成型、射出成型、圧縮成型、繊維化、製紙化又はシート化等の加工を施して、電気絶縁材料、電子部品成型材料、耐熱接着剤又は塗料等の産業上幅広い用途を有するものである。

例えば、本発明の化合物の一つである次式の構造を有する芳香族ポリエステルアミド（実施例1で得た）は、



で示される構造単位を含み、各構造単位がエステル結合及び／又はアミド結合により連結され、かつ末端がアリールオキシ基を有し、0.4～1.0 dl/g（シクロヘキサノン中、30℃で測定）の対数粘度を有する芳香族ポリエステルアミドの製造方法であって、

テレフタル酸ジクロリド及び／又はイソフタル酸ジクロリドと、2,2-ビス（4'-ヒドロキシフェニル）プロパン及び2,2-（4'-ヒドロキシ-4''-アミノジフェニル）プロパンとを分子量調節剤である芳香族モノヒドロキシ化合物と共に重縮合させることを特徴とするものである。

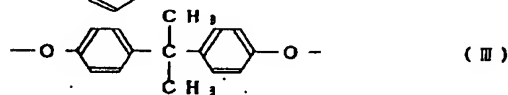
本発明に使用される分子量調節剤は2,2-ビス（4'-ヒドロキシフェニル）プロパンと同程度の反応性を有する化合物であれば格別限定されない。この分子量調節剤として好ましくは芳香族モノヒ

（式中、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 及び Y^4 は-O-基又は-NH-基を表わし、 Y^1 と Y^2 は及び／又は Y^3 と Y^4 が同時に-NH-基であることはなく、 n は約130である。）

重畳平均分子量が 4.8×10^4 （平均重合度：約130）であり、ガラス転位温度が221℃、熱天秤により測定した5%重畳減少温度が435℃であった。また、対数粘度は0.63dl/gであった。ついで、得られた重合物を加圧成形機により、280℃、20.0 kg/cm²に圧縮成形して試作板を得た。この試作板は、そり、歪み、フィッシュアイ、色むら等の異常のない良好な成形物であった。

本発明の芳香族ポリエステルアミドの製造方法は、

式（I）、（II）、（III）及び（IV）：



ドロキシ化合物であり、例えばフェノール、*o*-クレゾール、*m*-クレゾール、*p*-クレゾール、2,3-キシレノール、2,4-キシレノール、2,5-キシレノール、2,6-キシレノール、3,4-キシレノール、3,5-キシレノール、2,3,5-トリメチルフェノール、2,3,6-トリメチルフェノール、2,4,6-トリメチルフェノール、*o*-メトキシフェノール、*m*-メトキシフェノール、*p*-メトキシフェノール、*o*-フェニルフェノール、*m*-フェニルフェノール、*p*-フェニルフェノール、*p*-ベンジルフェノール、2-フェニルフェノール-2-（4'-ヒドロキシフェニル）プロパン等が挙げられる。

この分子量調節剤の使用量は、目的とする芳香族ポリエステルアミドの所望の分子量に応じて異なるが、テレフタル酸ジクロリド及び／又はイソフタル酸ジクロリドの合計した当量に対し、通常、0.2～3当量%の範囲であり、好ましくは0.4～2.5当量%の範囲である。この0.2当量%未満の場合は、重合体の分子量が大きくなりすぎ、3当

量%を超える場合には分子量が小さくなりすぎるため望ましくない。

本発明の芳香族ポリエステルアミドは重縮合反応によって行われるものであり、通常、溶液重合法又は界面重合法を適用して行われる。

まず、溶液重合法においては、原料及び分子量調節剤を非反応性有機溶剤中、酸受容剤の存在下に重縮合反応を進める。原料及び分子量調節剤の使用量は、例えば原料Aの合計当量に対し、原料B及び分子量調節剤の合計当量百分率が、通常、99～101%の範囲であり、好ましくは化学量論量である。非反応性有機溶剤は芳香族ポリエステルアミドを溶解するものであれば格別限定されず、この具体例としては、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、塩化メチレン、クロロホルム、テトラクロロエチレン等が挙げられる。酸受容剤の具体例としては、トリエチルアミン、トリーノブピルアミン、トリーノブチルアミン、ベンジルジメチルアミン、ピリジン、ピコリン等の第3級アミンが挙げられる。

る。

原料及び分子量調節剤の使用量は、原料Aの合計当量に対して原料Bおよび分子量調節剤の合計当量百分率が、通常、99～105当量%の範囲、好ましくは化学量論量である。有機溶剤は芳香族ポリエステルアミドの溶解力が優れ、かつ水と混和し難いものであり、この具体例としては、塩化メチレン、クロロホルム、テトラクロロエチレン、シクロヘキサノン等が挙げられる。アルカリは、通常、アルカリ金属の水酸化物であり、この具体例としては、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等が挙げられる。

原料及び分子量調節剤を使用して、反応系を形成する順序及び方法は格別限定されない。この具体例としては、原料Bおよび分子量調節剤を溶解したアルカリ水溶液に、原料Aを溶解せしめた有機溶剤溶液を、激しく攪拌下、一度に添加・混和して反応せしめる方法等があげられる。

有機溶剤中の原料Aの濃度は、通常、2～25重量%の範囲、好ましくは5～20重量%の範囲

原料、分子量調節剤及び酸受容剤を使用して、反応系を形成する順序及び方法は格別限定されない。この具体例としては、原料B、分子量調節剤及び酸受容剤から成る溶液に原料Aの溶液を徐々に添加する方法、又は原料Aの溶液に原料B、分子量調節剤及び酸受容剤から成る溶液を添加する方法等が挙げられる。

非反応性有機溶剤中の原料及び分子量調節剤の濃度は、合計量で、通常、2～25重量%の範囲、好ましくは5～20重量%の範囲である。酸受容剤の使用量は、通常、原料Aの合計当量に対し、100～110当量%の範囲、好ましくは生成する酸に対して化学量論量もしくはそれ以上である。

反応温度は、通常、0～30℃の範囲、好ましくは10～25℃の範囲であり、反応時間は、通常、1～20時間の範囲、好ましくは2～10時間である。

つぎに、界面重合法においては、原料A及び非反応性有機溶剤の溶液と、原料B及び分子量調節剤のアルカリ水溶液とを混合して重縮合反応を進め

である。アルカリ水溶液中の原料B及び分子量調節剤の濃度は、通常、2～25重量%の範囲、好ましくは5～20重量%の範囲である。アルカリの使用量は、通常、原料Aの合計当量に対し100～110当量%の範囲、好ましくは生成する酸に対して化学量論量もしくはそれ以上である。

反応温度は、通常、0～30℃の範囲、好ましくは10～20℃の範囲であり、反応時間は、通常、0.1～2時間の範囲、好ましくは1時間前後である。

なお、界面重合法においては、重縮合反応を円滑に進行させるため、必要に応じて分散剤を使用してもよい。この分散剤の具体例としては、ラウリル硫酸ナトリウム、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム、セチルトリメチルアンモニウムクロリド、セチルピリジニウムクロリド、トリメチルベンジルアンモニウムクロリド等が挙げられる。

前記した溶液重縮合反応及び界面重縮合反応の後処理は、公知の方法を適用して、生成した芳香族ポリエステルアミドを単離すればよい。この方法の

具体例としては、反応混合物もしくは反応溶液を、メタノール、エタノール、トルエン及びアセトン等の芳香族ポリエステルアミドの非溶剤中に注ぎポリマーを沈澱せしめる方法等が挙げられる。

本発明の製造方法において、溶液重合法と界面重合法を比較した場合、溶液重合法は反応時間は長いが反応の再現性において優れ、即ち、予定した任意の分子量を有する芳香族ポリエステルアミドを再現性良く製造するという点において優れている。しかし、界面重合法を採用した場合も、重合反応の再現性には劣るものの分子量調節剤を使用する効果は良好であり、望まれる分子量の芳香族ポリエステルアミドを得ることができる。

本発明の製造方法に係る芳香族ポリエステルアミドは、対数粘度が $0.4 \sim 1.0 \text{ dl/g}$ の範囲、好ましくは $0.5 \sim 0.9 \text{ dl/g}$ の範囲のものである。なお、この対数粘度はポリマーの濃度 0.5 g/dl のシクロヘキサノン溶液の 30°C における粘度をウベローデ型粘度計を使用して測定したものであって、対数粘度は次式で求めた。

$$\text{対数粘度} = \frac{\ln \left(\frac{\text{ポリマー溶液の流れ時間}}{\text{溶剤のみの流れ時間}} \right)}{\text{ポリマー濃度}}$$

(式中、ポリマー濃度の単位は g/dl である)

本発明の製造方法に係る芳香族ポリエステルアミドは、耐熱性等の諸特性が優れているため、高性能エンジニアリング・プラスチック等の様々な用途に応用され得る。また、この成形品は粉末、チップもしくはペレット状のものに、圧縮成形、熔融押出し成形、トランスファー成形、射出成形等の各種の方法を適用して作成され得る。

圧縮成形法では、ポリマーの溶融点以下、ガラス転位点以上の温度で成形することが望ましく、通常、その温度は $200 \sim 300^\circ\text{C}$ で実施するのが有利である。熔融押出し法、トランスファー成形法又は射出成形法などでは、熔融ポリマーの流れ性と熱分解を考慮して、通常、 $260 \sim 360^\circ\text{C}$ の温度で実施するのが有利である。

本発明の製造方法に係る芳香族ポリエステルアミドは各種のポリマーや無機質の充填剤や繊維などを混合し、その成形性、耐熱性、機械的強度等の性質を改良することもできる。更に、成形物の耐熱性、耐光性、耐酸化性、耐候性などを改良するために安定剤として紫外線吸収剤、例えば、 α -オキシベンゾフェノン誘導体、サリチル酸エステル、ベンゾトリアゾール誘導体等、あるいは酸化防止剤、例えばフェノール誘導体、ホスファイト系化合物等、を添加することもできる。また、ポリマーの成形加工性や機械的特性を改良する目的で可塑剤あるいは熔融粘度調節剤、例えば、フタル酸エステル、リン酸エステル等、を添加することもできる。更に、難燃性や消炎性を付与するために酸化アンチモンあるいはホスフェート化合物などを配合することもできる。

(発明の効果)

以上に詳述した通り、本発明の芳香族ポリエステルアミドは高い耐熱性、高い機械的強度及び良好な電気絶縁性等を保持し、しかも成形性が優れ

ているため、その耐熱性樹脂としての工業的価値は極めて大である。

(発明の実施例)

以下、本発明の実施例及び比較例を掲げ、更に詳細に説明する。なお、実施例及び比較例中、「部」はすべて「重量部」を示す。重合反応は全て窒素雰囲気下で行った。また、ガラス転位温度は示差走査熱量分析(DSC)により測定し、曲げ強度及び曲げ弾性率はASTM D-790の測定法に従った。

実施例 1

2,2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)プロパン 114.8部、2,2-ビス(4'-ヒドロキシ-4"-アミノジフェニル)プロパン 110.2部及びp-ヒドロキシジフェニル 4.71部にテトラヒドロフラン 1200部とトリエチルアミン 214部を加えて溶解した。この溶液を $20 \sim 25^\circ\text{C}$ に保ちつつ攪拌しながら、テレフタル酸ジクロリド 101.5部とイソフタル酸ジクロリド 101.9部をテトラヒドロフラン 500部に溶解した溶液を15分間にわたって徐々に加え、

その後20～25℃にて8時間反応を行わせた。反応終了後、反応混合物をメタノール20000部中に投入してポリマーを析出せしめ、ポリマーを単離した。このポリマーを再度テトラヒドロフラン2300部に溶解し、メタノール20000部中に投入して再沈澱し、ポリマーを精製した。得られた芳香族ポリエステルアミドの収量は348部(収率96%)であった。

得られた芳香族ポリエステルアミドの対数粘度は0.63dl/gであった。本実施例では、p-ヒドロキシジフェニルの添加量は、ポリマーの対数粘度が0.65dl/gとなるように予定し使用したものである。このポリマーを加圧成形機により、温度280℃、圧力200kg/cm²にて圧縮成形し直径100mm、厚さ0.5～6mmの板を試作した。得られた試作板は淡黄色透明で、異状形態の成形物はできず、機械的にも強靱なものであった。

実施例2～6

分子量調節剤としてフェノール、m-クレゾール、p-ヒドロキシジフェニル、p-ベンジルフ

エノールを使用して、実施例1と同様にして芳香族ポリエステルアミドを製造した。反応条件、ポリマー収率及び対数粘度を表1に示す。

比較例1

分子量調節剤の芳香族モノヒドロキシ化合物を使用しない以外は実施例1と同様にして重合を行った。即ち、2,2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)プロパン57.53部、2,2-ビス(4'-ヒドロキシ-4"-アミノジフェニル)プロパン56.37部、テレフタル酸ジクロリド50.45部及びイソフタル酸ジクロリド51.06部をテトラヒドロフラン1100部中でトリエチルアミン105部の存在下に反応せしめ芳香族ポリエステルアミド174部(収率97%)を得た。

得られた芳香族ポリエステルアミドの対数粘度は1.29dl/gであった。このポリマーを実施例1と同じ条件で圧縮成形したところ、厚さの薄い(0.5～3mm)試作板の形状は比較的良好であったが、厚さの厚い(4～6mm)試作板はそりが生じた。

比較例2

分子量調節剤としてp-ヒドロキシジフェニルを多く使用する以外は、実施例1と同様にして重合を行った。即ち、2,2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)プロパン57.41部、2,2-ビス(4'-ヒドロキシ-4"-アミノジフェニル)プロパン54.32部、p-ヒドロキシジフェニル3.58部、テレフタル酸ジクロリド50.75部及びイソフタル酸ジクロリド50.96部をテトラヒドロフラン850部中でトリエチルアミン106部の存在下に反応せしめ芳香族ポリエステルアミド175部(収率97%)を得た。

得られた芳香族ポリエステルアミドの対数粘度は0.38dl/gであった。このポリマーを温度250℃、圧力100kg/cm²にて圧縮成形し実施例1と同様な板を試作したが機械的強度は脆かった。

なお、実施例1～6および比較例1および2で得られた芳香族ポリエステルアミドのガラス転位温度、成形物の曲げ強度および曲げ弾性率、成形物の外観を表2に示す。

実施例7

実施例1で得た芳香族ポリエステルアミドの溶融粘度をK_oK_a式フローテスターで測定したところ、320℃、圧力100kg/cm²の条件下で 5.2×10^4 poiseで良好な流れ性を示した。

これに対し、比較例1の芳香族ポリエステルアミドでは、溶融粘度が 5×10^5 poise以上に達し、流れ性に乏しかった。また、比較例2の芳香族ポリエステルアミドは、溶融粘度が 3.6×10^3 poiseと小さく流れ性にすぐれていたが、溶融粘度押出成形物は、機械的強度が脆かった。

比較例3

分子量調節剤を使用すると、2,2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)プロパン及び2,2-ビス(4'-ヒドロキシ-4"-アミノジフェニル)プロパンの合計のモル数と、テレフタル酸ジクロリド及びイソフタル酸ジクロリドの合計のモル数との比を0.98:1.00とする以外は実施例1と同様にして重合を行ない、対数粘度0.51dl/gの芳香族

ポリエステルアミド(収率; 93%)を得た。

実施例 8

比較例1及び比較例3で得た芳香族ポリエステルアミドを各々1.4-ジオキサランに溶解し、キャスト法により30μ厚のフィルムを作成した。これら2様のフィルムを210℃、空气中で120時間加熱したのち、各々の芳香族ポリエステルアミドの対数粘度を測定した。実施例1の芳香族ポリエステルアミドのフィルムでは0.61dl/gで、対数粘度の保持率は97%で、分子量の変化はわずかであった。これに対し、比較例3の芳香族ポリエステルアミドのフィルムでは0.42dl/gで、対数粘度の保持率は82%で分子量の低下がみられた。

表-1

実施例	テレフタル酸ジクロリド 部	イソフタル酸ジクロリド 部	2,2-ビス(4'-ヒドロキシフェニル)プロパン 部	2,2-(4'-ヒドロキシ-4'-アミノジフェニル)プロパン 部	芳香族モノヒドロキシ化合物 部	酸受容剤 部	溶剤 部	反応温度 ℃	反応時間 時間	ポリマー収率 %	対数粘度 dl/g
2	51.26	51.07	58.22	56.12	フェノール 0.96	トリエチルアミン 107	テトラヒドロフラン 850	20~25	8	97	0.68
3	50.96	50.96	57.30	55.91	m-クレゾール 1.14	トリエチルアミン 108	クロロホルム 850	20~25	5	97	0.66
4	50.75	51.16	57.30	54.89	p-ヒドロキシジフェニル 3.17	トリエチルアミン 107	テトラヒドロフラン 850	20~25	8	96	0.51
5	50.75	51.37	57.64	56.14	p-ヒドロキシジフェニル 1.14	トリエチルアミン 108	テトラヒドロフラン 1,000	20~25	8	98	0.82
6	51.16	51.37	58.33	55.33	p-ベンジルフェノール 2.32	トリエチルアミン 108	塩化メチレン 850	20~25	5	97	0.65

表 2

芳香族ポリエス テルアミド	ガラス転位 温度 ℃	曲げ強度 kg/mm ²	曲げ 弾性率 kg/mm ²	外観
実施例 1	223	11.2	241	異常 なし
実施例 2	226	11.1	242	"
実施例 3	225	11.3	241	"
実施例 4	217	11.3	240	"
実施例 5	227	11.0	238	"
実施例 6	225	11.3	240	"
比較例 1	229	10.9	238	そり 発生
比較例 2	182	脆い	脆い	異常 なし